

## 明 細 書

## 発泡成形用樹脂組成物、発泡体、および発泡体の製造方法

## 5 技術分野

本発明は、発泡成形用樹脂組成物、発泡体、および発泡体の製造方法に関する。  
詳しくは、本発明は、自動車用内装材部品などに使用可能な低発泡から高発泡  
までの発泡倍率の自由度が高く、柔軟で、クッション性や断熱性、リサイクル性  
に優れた発泡成形体を得ることのできるオレフィン系樹脂組成物、該樹脂組成物  
10 を用いて得られる発泡体、および発泡体の製造方法に関するものである。

## 背景技術

従来から型内発泡成形で、発泡倍率が高く、型内での成形加工性に優れ、柔軟  
な感触やクッション性のある発泡材料として、ウレタンフォームがあるが、熱硬  
15 化性樹脂であるため、マテリアルリサイクル面でチップフォームとしての利用は  
あるが、再度、発泡原料としてリサイクルする課題が多くあり、リサイクルポテ  
ンシャルの低い材料である。

熱可塑性オレフィン系エラストマーはリサイクル性の良い材料として広く使  
われており、その発泡体についても取り組みがなされている（特開昭54-11  
20 2967号公報）。この先行技術には、「（a）ペルオキシド架橋型オレフィン  
系共重合体ゴム90ないし50重量部と、（b）ペルオキシド分解型オレフィン  
系プラスチック10ないし50重量部（ここで、（a）＋（b）は100重量部  
）と、（c）ペルオキシド非架橋型ゴム状物質および／または（d）鉱物油系軟  
化剤5ないし50重量部とから混合物を得て、この混合物を有機ペルオキシドの  
25 存在下で動的に熱処理して、軽度に架橋されたゴム組成物（A）と分解型発泡剤  
（B）とからなる発泡組成物を得て、この発泡組成物を加熱融解した後に発泡せ  
しめて成形品を得ることを特徴とする熱可塑性エラストマー発泡体の製造方法」

が開示されている。

しかし、この特開昭 5 4 - 1 1 2 9 6 7 号公報に開示の技術では、その実施例中にも開示されているように、得られる発泡体の発泡倍率はきわめて低く実用に供することはできない。このことは、本発明者らによる追試実験によっても、確認された。

前記特開昭 5 4 - 1 1 2 9 6 7 号公報に開示の技術における問題点を改良する取り組みとして、部分架橋されたオレフィン系熱可塑性エラストマーに、特定のオレフィン樹脂を少量配合することで、リサイクル性に優れた内装表皮材のクッション層（発泡成形体）を形成させる方法が、提案されている（特開平 9 - 1 4 3 2 9 7 号公報）。その他に、同じく部分架橋されたオレフィン系熱可塑性エラストマーに、特定のスチレン系熱可塑性エラストマーを少量配合することで、リサイクル性に優れた内装表皮材のクッション層（発泡成形体）を形成させる方法も提案されている（特開平 1 4 - 2 0 6 0 3 4 号公報）。

しかしながら、前者の特開平 9 - 1 4 3 2 9 7 号公報に記載の技術では押出し発泡で発泡倍率が最高 2. 9 倍であり、後者の特開平 1 4 - 2 0 6 0 3 4 号公報に記載の技術では射出発泡で発泡倍率が最高 2. 5 倍であり、どちらも発泡倍率は低く、感触、クッション面では十分なものが得られていない。

従来から柔軟なクッション性を高める手段として、オレフィン系熱可塑性エラストマーベースの材料に架橋剤等を用いて架橋を施し（ゲル分率を高め）、流動粘度を上げることで高発泡させる方法（特開昭 5 4 - 1 1 2 9 6 7 号公報および特開平 9 - 1 4 3 2 9 7 号公報）が知られている。

これら特開昭 5 4 - 1 1 2 9 6 7 号公報および特開平 9 - 1 4 3 2 9 7 号公報に開示の技術は、樹脂自体のゴム弾性の向上には寄与するが、発泡に対しては種々の問題があることが、本発明者らの研究で明らかになってきた。すなわち、特開昭 5 4 - 1 1 2 9 6 7 号公報および特開平 9 - 1 4 3 2 9 7 号公報に開示の技術では、（i）発泡成形させる前にベース材料に発泡剤の分散、溶解、溶存が必要なことから、ベース材料の架橋密度（ゲル分率）が高くなると、ベース材

料への発泡剤の均一な分散、溶解、溶存ができなくなり、(ii) それによって、配合した発泡剤が有効に発泡に寄与することができなくなり、(iii) 結果的に発泡倍率が上らない、このような問題が生じることを、本発明者らは見出した。さらに、これら文献に開示の技術では、(iv) 粘度が高くなるため、ベース樹脂への剪断が著しくなり、発泡剤の分散時に、ベース材料のマイクロ凝集構造の変化や、同時に剪断によるベース樹脂の分解も起こり、(v) それによって、極端な流動粘度の低下を招き、成形型内やダイスでの高発泡や成形形状の制御が不安定であることも、本発明者らは、自身の研究から、知るに至った。

このように、従来のいずれの提案によっても、リサイクル性や型内成形加工性に優れ、かつクッション層の発泡倍率が高く、質感にも優れた柔軟なクッション性を有する型内発泡成形品は、未だに提供されていないのが現状である。

本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであって、その課題は、自動車用内装材部品などに使用可能な、高発泡倍率も可能であり、柔軟で、クッション性や断熱性に優れた発泡成形体を得ることのできる樹脂組成物、該樹脂組成物を用いて得られた発泡体、および該発泡体の製造方法を提供することにある。

#### 発明の開示

本発明者らは、前記課題を解決するために、鋭意、研究を重ねた結果、特定組成のオレフィン系熱可塑性エラストマー組成物を発泡成形用樹脂組成物として用いることにより、所望の発泡体を得ることができることを確認するに至った。

#### (発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマー組成物)

本発明者らが特定するに至った樹脂組成物は、高発泡倍率も可能であり、柔軟なクッション性や断熱性に優れた発泡体を得ることのできるオレフィン系熱可塑性エラストマーである。このオレフィン系熱可塑性エラストマーは、有機過酸化化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) とからなり、これらゴム (A) と樹脂 (B) の混練り反応によって得られる分岐したゴム状オレフィン系軟質樹脂 (C) であって、そのマイクロ凝

集構造において、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）が連続相として存在しているとともに、有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が不連続相として存在していることを特徴とする。

本発明でいうマイクロ凝集構造とは、ゴム成分と樹脂成分とからなる発泡成型用樹脂組成物を、三酸化オスミニウムや四酸化ルテニウム等の染色剤で、処理して、透過型電子顕微鏡（加速電圧200kV：以下、TEMと記す）を用いて観察した場合に得られる「ミクロなゴム相と結晶相の組織構造」を意味する。本発明にかかるオレフィン系熱可塑性エラストマーでは、以下に説明するように、ゴム成分が連続相を形成しており、このゴム成分の連続相中に樹脂成分が島状に分散している組織構造に特徴がある。

かかるマイクロ凝集構造でのゴム相と結晶相の判断は、次のようにして可能になる。すなわち、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）単体のみに染色剤処理してTEM観察したものは、全面暗黒色であり、一方、有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）単体のみで同様の処理して観察したものは、全面明白色であったことから、ゴム成分相が暗黒色、結晶成分相が明白色と判断できる。

前述のように、本発明の樹脂組成物の特徴は、「その構成成分である有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）が連続相として存在しているとともに、他の構成成分である有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が不連続相として存在している」というマイクロ凝集構造を持っていることにある。このマイクロ凝集構造は、狭い範囲に固定されるものではなく、比較的変動の幅がある。すなわち、連続相と不連続相の占める面積は固定的なものでなく、ある変動幅があり、その変動幅により低発泡倍率から高発泡倍率までの広い倍率範囲を任意に設定可能となっている。したがって、本発明では、かかるマイクロ凝集構造を制御することによって、所望とする発泡倍率の発泡体を得ることができる。その制御ファクターとしては、次のように種々のものがある。すなわち、本発明の「連続相と不連続相からなるマイクロ凝集構造」は、ゴム成分と結晶性樹脂成分の組成

、分子量、配合比率により制御でき、また、混合時の剪断の度合いや温度等の条件、後述するようなゴム状オレフィン系軟質樹脂の分岐の度合い（ゲル分率）、各成分の熔融粘度差、相溶化剤の配合など界面張力の関係から制御できる。このように制御ファクターが種々あるということは、制御ファクターを種々組み合わせることで、発泡倍率をきめ細かく制御できることを意味し、その点も、「低発泡倍率から従来以上の高発泡倍率までをカバーした任意の発泡倍率の発泡体を提供できるという本発明の特徴」に寄与している。

本発明者等の研究によれば、ゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）のマイクロ凝集構造が、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）が連続相として存在し、有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が不連続相として存在する組織的構造であると、発泡性に優れ、発泡倍率3倍以上が可能となる。これに対して、ゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）のマイクロ凝集構造が、有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が連続相として存在し、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（B）が不連続相として存在する組織的構造になっていると、発泡性が劣り発泡倍率3倍以上が安定して得られ難く、かつ連続相が結晶性オレフィン樹脂（B）となるため、柔軟性、クッション性がさらに悪化することを見出した。

（有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A））

本発明で用いられる有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）は、炭素原子数2～20の $\alpha$ -オレフィン含有量が50モル%以上の無定形ランダムな弾性共重合体または結晶化度が50%以下の弾性共重合体であって、2種類以上の $\alpha$ -オレフィンからなる非結晶性 $\alpha$ -オレフィン、あるいは2種類以上の $\alpha$ -オレフィンと非共役ジエン共重合体である。

このようなオレフィン系共重合体ゴムの具体的な例としては、以下のようなゴムが挙げられる。

（a）エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム

[エチレン/ $\alpha$ -オレフィン（モル比）＝約90/10～50/50]

(b) エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ジエン共重合体ゴム

[エチレン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]

(c) プロピレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム

[プロピレン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]

5 (d) ブテン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム

[ブテン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]

上記、 $\alpha$ -オレフィンとしては、具体的には、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、  
10 1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、9-メチル-1-デセン、1  
15 1-メチル-1-ドデセン、12-エチル-1-テトラデセン、およびこれらの組み合わせが挙げられる。

また、上記非共役ジエンとしては、具体的には、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、シクロオクタジエン、メチレンノルボルネン、エチリデンノルボルネンなどが挙げられる。

20 これらの共重合体ゴムのムーニー粘度 [ML 1・4 (100℃)] は 10 ~ 250、特に 40 ~ 150 が好ましい。

また、上記 (b) のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ジエン共重合体ゴムは、ヨウ素価が 25 以下であることが好ましい。

本発明で用いられる有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) との混合物においては、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) の配合量は、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B)

25

）との合計100重量部に対して、好ましくは30重量部以上100重量部未満、さらに好ましくは60重量部以上100重量部未満、特に好ましくは65～95重量部である。

5 有機過酸化化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）の配合割合で、好ましい割合から好ましくない割合に逸脱すると、混合混練りして得られるゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）のマイクロ凝集構造において、連続相と不連続相の成分が逆転に移行して行き、発泡倍率が低下する傾向となる。

（有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B））

10 本発明で用いられる有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）としては、炭素原子数2～20の $\alpha$ -オレフィンの単独重合体または共重合体が挙げられる。

上記有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）の具体的な例としては、以下のような（共）重合体が挙げられる。

15 （イ）プロピレン単独重合体

（ロ）プロピレンと10モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体

（ハ）プロピレンと30モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのブロック共重合体

（ニ）1-ブテン単独重合体

（ホ）1-ブテン単独重合体10モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのランダム  
20 共重合体

（ヘ）4-メチル-1-ペンテン単独重合体

（ト）4-メチル-1-ペンテンと20モル%以下の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体

上記 $\alpha$ -オレフィンとしては、具体的には、上述したオレフィン共重合体ゴム  
25 を構成する $\alpha$ -オレフィンの具体例と同様の $\alpha$ -オレフィンが挙げられる。

本発明で用いられる「有機過酸化化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との混合物」においては、有機

過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）の配合量は、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との合計量100重量部に対して、好ましくは70重量部未満、さらに好ましくは40重量部未満、特に好ましくは5～35重量部である。

- 5      上記のような「有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との混合物」の改質材として、スチレン・ブタジエン（イソプレン）・スチレンブロック共重合体、ポリブタジエンゴム、ポリイソプレンゴム、またこれらの各種水添系ゴム、および、イソブチレンゴム、塩素化ポリエチレン等を、オレフィン系合成ゴムと結晶性ポリオレフィン樹脂との合計量100重量%に対して、50重量%以下の量で添加すると、本発明におけるマイクロ凝集構造を安定にできる効果がある。
- 10

- また、同混合物の軟化材として、パラフィン系、ナフテン系、あるいはアロマチック系の軟化剤またはエステル系可塑剤等を、有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）と有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）との合計量100重量%に対して、50重量%以下の量で添加してもよい。
- 15

- 上記のような有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）は、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との混合物からなる未発泡の発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマー中において、主として分岐の状態で存在し、架橋の割合は少ないため、発泡剤の分散・混練・溶解に支障がなく、射出成形や押出成形時の流動性と発泡性に支障を来すことはない。
- 20

#### （分岐）

- 従来から用いられているゲル分率の測定方法は、溶媒にシクロヘキサンを用い、この溶媒に被測定化合物を室温にて48時間浸漬させ、溶媒に不溶な成分をゲル分として取り扱っている。シクロヘキサンは、非架橋のEPDMゴムをほぼ溶解させることができるが、非架橋結晶性のポリプロピレンはほとんど溶解できない。EPDMゴムの架橋部をゲル分として評価する場合や、非架橋結晶性ポリブ
- 25

ロピレンを疑似架橋のゲル分として評価する場合は、シクロヘキサンを溶媒とした従来のゲル分率の測定方法や測定値は、疑似架橋も含めた広義の架橋とし、ベース材料の機械物性を表す指標としての意味を有するものである。ところが、本発明者等の研究の結果では、発泡性を高めるための大きな要因は、化学的な架橋および分岐であり、疑似架橋はほとんど寄与してないことが、知見された。したがって、発泡性を支配する指標としては、シクロヘキサンを溶媒として測定されたゲル分率は、全く意味を有さない不適正な測定方法であることも分かってきた。

本発明において「発泡性を高めるために寄与するものとして特定した化学的な分岐」の評価可能な指標としては、以下のゲル分率が好ましい。このゲル分率は、次のようにして計測する。すなわち、発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマーを0.5mm角サイズ大でカット調整された0.5gをステンレスメッシュ(#600)中に精秤して包み、これを沸騰キシレン(138℃)中で3時間抽出後、別に準備しておいた沸騰キシレンで再度充分洗浄した後、アセトンで置換し、80℃オープン中で24時間乾燥させ、メッシュ中の抽出後残存物の重量を秤量し、最初の重量に対する抽出後の残存物の重量比率を算出し、この値をゲル分率(%)とする。

本発明の発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマーにおいて、発泡成形加工時の流動性と発泡性に支障を来さないためには、オレフィン系熱可塑性エラストマーの中に存在する分岐の割合が、沸騰キシレン(138℃)3時間抽出でのゲル分率として、10wt%未満であることが望ましく、さらには5wt%未満が好ましい。

このゲル分率が10wt%未満であると、流動性に優れ、かつ発泡倍率も高く、型内やダイスでの発泡成形が容易になるので、特に好ましい。これに対し、発泡成形させる前にベース材料に発泡剤の分散、溶解、溶存が必要なことから、ゲル分率が10wt%以上になると、すなわち、ベース材料の架橋密度(ゲル分率)が高くなると、ベース材料への発泡剤の均一な分散、溶解、溶存が難しくな

り、発泡倍率が上がらず、また、流動性が悪いため、型内やダイスでの発泡成形形状に著しく劣る傾向となる。

また、ゲル分率が10wt%以上になると、流動粘度が高いため、型内発泡成形前の発泡剤との分散混練り時に剪断発熱による分子の切断が著しく、例え、オ  
5 レフィン系熱可塑性エラストマー(C)中の有機過酸化物架橋型オレフィン系共  
重合体ゴム(A)の成分分率が65~95重量部(有機過酸化物分解型結晶性オ  
レフィン樹脂(B)が35~5重量部)であっても、マイクロ凝集構造が、有機過  
酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂(B)が連続相を構成し、有機過酸化物架橋  
10 型オレフィン系共重合体ゴム(A)が不連続相を構成するという、好ましい連続  
／不連続相構造とは逆転した相構造となり、発泡倍率が著しく低下することにな  
る。

かかるゲル分率10wt%未満の分岐を施す方法としては、有機過酸化物架橋  
型オレフィン系共重合体ゴムと有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂を高  
温にて混練することで反応させることもできるし、架橋剤として、通常ゴムの加  
15 硫に用いられる架橋剤を用いることができる。好ましくは、過酸化物を用いる方  
法、電子線照射、硫黄加硫、シラン架橋等公知の方法を用いることができる。さ  
らに、フェノール樹脂系としては、アルキルフェノール樹脂の臭素化物や、塩化  
スズ、クロロプレン等のハロゲンドナーとアルキルフェノール樹脂とを含有する  
混合架橋系等の硬化剤も用いることができる。これらの分岐を施す方法の中でも  
20 、過酸化物を用いる方法と、電子線照射が簡易に制御し易いので望ましい方法で  
ある。

前記過酸化物として好ましく用いられる具体例としては、ジクミルペルオキシ  
ド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t  
25 r t-ブチルペルオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t e r t  
-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3、1,3-ビス(t e r t-ブチルペルオキ  
シイソプロピル)ベンゼン、1,1-ビス(t e r t-ブチルペルオキシ)-3  
,3, -トリメチルシクロヘキサン、n-ブチル-4,4-ビス(t e r t-

ブチルペルオキシ) バレレート、ベンゾイルペルオキシド、p-クロロベンゾイルペルオキシド、2, 4ジクロロベンゾイルペルオキシド、tert-ブチルペルオキシベンゾエート、tert-ブチルペルベンゾエート、tert-ブチルペルオキシイソプロピルカーボネート、ジアセチルペルオキシド、ラウロイルペルオキシド、tert-ブチルクミルペルオキシドなどが挙げられる。

これらの過酸化物の内では、臭気性、スコーチ安定性の点で、2, 5-ジメチルー2, 5-ジ (tert-ブチルペルオキシ) ヘキサン、2, 5-ジメチルー2, 5-ジ (tert-ブチルペルオキシ) ヘキシノー3, 1, 3ビス (tert-ブチルペルオキシイソプロピル) ベンゼン、1, 1-ビス (tert-ブチルペルオキシ) -3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、n-ブチルー4, 4-ビス (tert-ブチルペルオキシ) バレレートが好ましく、なかでも1, 3ビス (tert-ブチルペルオキシイソプロピル) ベンゼンが最も好ましい。

この過酸化物は、未発泡の発泡樹脂基材の全体100重量部に対して、通常0.01~2.5重量部程度の配合が好ましく、実際的な配合量は発泡体の気泡径、ゲル分率、密度等のバランスを考慮して調整される。

本発明においては、上記過酸化物による分岐処理に際し、その助剤として、硫黄、p-キノンジオキシム、p, p'-ベンゾイルキノンジオキシム、N-メチルーN-4-ジニトロソアニリン、ニトロソベンゼン、ジフェニルグアニジン、N, N'-m-フェニレンジマレイミドのようなペルオキシ架橋用助剤、あるいはジビニルベンゼン、トリアリルシアヌレート、エチレングリコールジメタクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、アクリルメタクリレートのような多官能性メタクリレートモノマー、ビニルブチラート、ビニルステアレートのような多官能性ビニルモノマーを配合することができる。

これら助剤の配合量によっても、発泡基材樹脂の流動性や発泡性の調整を適宜行うことができる。

ただし、樹脂の分岐を、電子線、中性子線、 $\alpha$ 線、 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線、X線、紫外線等の電離性放射線の照射により行う場合は、架橋剤を配合しなくともよいが、電

離性放射線の照射による分岐に際しては、その助剤として、ジビニルベンゼン、トリアリルシアヌレート、エチレングリコールジメタクリレート、トリメチロパントリメタクリレート、アクリルメタクリレートのような多官能性メタクリレートモノマー、ビニルブチレート、ビニルステアレートのような多官能性ビニルモノマーを配合することができる。

(その他の添加剤)

また、本発明で用いられる、発泡基材樹脂中に、その他必要に応じて各種耐候安定剤、耐熱安定剤、可塑剤、難燃剤、増粘剤、滑剤、着色剤、など、オレフィン系の熱可塑性樹脂および熱可塑性エラストマー組成物に通常用いられる添加剤を、本発明の目的を損なわない範囲において、添加することができる。

また、この他に、発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマー中に配合することもできる充填剤としては、具体的には、カーボンプラック、ニトロソ顔料、ベンガラ、フタロシアニン顔料、パルプ、繊維状チップ、カンテン等の有機充填材料、クレー、カオリン、シリカ、ケイソウ土、水酸化アルミニウム、酸化亜鉛、水酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、マイカ、ヴェントナイト、シラスバルーン、ゼオライト、珪酸白土、セメント、シリカフューム等の無機充填剤が挙げられる。

上記組成物の混練方法としては、V型ブラベンダー、タンブラーミキサー、リボンブラベンダー、ヘンシェルミキサーなどの公知の混練機を用いて、混練し、この混練物を、開放型のミクシングロールあるいは非開放型のバンバリーミキサー、押出し機、ニーダー、連続ミキサーなどの公知の混練機を用いて、混練分散させる方法が、好ましく用いることができる。

このような混練工程中に組成物を分岐反応させても良いし、分岐反応しないように混練し、得られた混練物を改めてオープンや熱プレス装置などで加熱することにより、静的に分岐反応させても良い。

これらによって調整される未発泡の発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマー組成物は、公知のペレタイザーでペレット形状にして用いるのが望ましい

。(発泡性樹脂と発泡体)

本発明においては、発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマー組成物に熱分解型発泡剤を発泡剤の分解温度以下で練り込むことで、未発泡の発泡性マスターバッチとして調整することもできる。

たとえば、発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマーと発泡剤をV型ブラベンダー、タンブラーミキサー、リボンブラベンダー、ヘンシェルミキサーなどの公知の混練機を用いて、混練必要であれば、この混練に続いてさらに、押出機、ミキシングロール、ニーダー、バンバリーミキサーなどで、熱分解型発泡剤の分解しない温度で混練り調整する。

発泡剤は、未発泡の発泡基材樹脂100重量部に対して、通常1～25重量部の割合で用いられる。

これらによって調整される未発泡の発泡成形用オレフィン系熱可塑性エラストマーのマスターバッチは、公知のペレタイザーでペレット形状にして用いるのが望ましい。

前述したオレフィン系発泡樹脂基材に配合される発泡剤は、熱分解してガスを発生する熱分解型発泡剤があり、このような発泡剤としては、具体的には、アゾジカーボンアミド(ADCA)、ジエチルアゾカルボキレート、アゾジカルボン酸バリウム、4,4-オキシビス(ベンゼンスルホンヒドラジド)、3,3-ジスルホンヒドラシドフェニルスルホン酸、N,N'-ジニトロソペンタメテトラミン、p-トルエンスルホンヒドラジド、トリヒドラジノトリアジンなどの有機発泡剤、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウム、炭酸アンモニウムなどの無機発泡剤等が挙げられる。特に有機発泡剤としては、アゾジカルボンアミド(ADCA)、N,N'-ジニトロソペンタメテトラミン、トリヒドラジノトリアジンが好ましく、無機発泡剤としては、炭酸水素ナトリウムが好ましい。また、炭酸水素ナトリウムとクエン酸モノナトリウムおよびグリセリン脂肪酸エステルを混合させて用いてもよい。これらの発泡剤は、単独または複数の組合せ、ま

たいわゆる分解助剤を併用して用いることができる。

また、発泡助剤、湿潤剤、耐候安定剤、耐熱安定剤、老化防止剤、着色剤などの添加剤および充填剤は、上記混練のいずれかの段階において配合する。

さらに、射出、または押出し成形時に、樹脂原料として発泡用オレフィン系熱可塑性エラストマーからなる発泡性マスターバッチ原料に加え、非晶性オレフィンゴムや結晶性オレフィン樹脂を配合混合させて用いてもよい。

前記非晶性オレフィンゴムとしては、具体的には、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム [エチレン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ジエン共重合体ゴムエチレン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]、プロピレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム [プロピレン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50]、ブテン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体ゴム [ブテン/ $\alpha$ -オレフィン (モル比) = 約 90/10 ~ 50/50] がある。

前記 $\alpha$ -オレフィンとしては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、9-メチル-1-デセン、11-メチル-1-ドデセン、12-エチル-1-テトラデセン、およびこれらの組合せがある。

また、前記結晶性オレフィン樹脂としては、プロピレンと10モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体、プロピレンと30モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのブロック共重合体、1-ブテン単独重合体、1-ブテン単独重合体10モル%以下の他の $\alpha$ -オレフィンとのランダム共重合体、4-メチル-1-ペンテン単独重合体、4-メチル-1-ペンテンと20モル%以下の $\alpha$ -オ

レフィンとのランダム共重合体がある。

本発明においては、熱分解型発泡剤による発泡に代えて、揮発性溶剤や水等によって樹脂を発泡させることもできる。

また、ガスそのものを発泡樹脂基材に分散あるいは含浸させることもでき、この場合、二酸化炭素ガスや窒素ガスが発泡剤として挙げられる。

具体的には、射出やスタンピング成形または押出し成形時に、成形機から発泡基材樹脂を出す前に、二酸化炭素や窒素、揮発性溶剤や水等の蒸気を注入して混練りし、分散させる方法を用いる。

射出または押出し前の、これら発泡剤の注入混練り条件としては、超臨界状態または非超臨界状態のいずれの状態であってもよい。

射出または押し出し前に発泡剤が混練分散された後は、ノズルを通して発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーが金型内またはダイスを経て発泡成形される。

射出成形の場合、ノズルを通して出された発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーに対し、公知の型動作で成形が可能である。つまり、金型が型閉め状態への射出成形、またスタンピング成形や、コアバック成形が可能である。

以上説明したように、本発明の発泡体用樹脂組成物は、有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との混練り反応によって得られ、そのマイクロ凝集構造において、前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）が連続相として存在するとともに、この連続相の中に前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が不連続相として存在している分岐したゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）から構成されており、前記マイクロ凝集構造を持つことによって、高い発泡倍率を発揮することができ、柔軟で、クッション性や断熱性に優れた発泡体を得ることができる。

したがって、本発明によれば、自動車用内装材部品などに使用可能な、発泡倍率が高いものも低いものも可能で、柔軟で、クッション性や断熱性、また射出成形、プレス成形、トランスファー成形、スタンピング成形など型内発泡成形性に

すぐれたリサイクル性のある発泡製品を提供することが可能になる。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、実施例1において調製した成型用樹脂組成物のマイクロ凝集構造を示す透過型電子顕微鏡写真を示す図であり、第2図は、実施例2において調製した成型用樹脂組成物のマイクロ凝集構造を示す透過型電子顕微鏡写真を示す図であり、第3図は、比較例1において調製した成型用樹脂組成物のマイクロ凝集構造を示す透過型電子顕微鏡写真を示す図であり、第4図は、比較例2において調製した成型用樹脂組成物のマイクロ凝集構造を示す透過型電子顕微鏡写真を示す図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、以下の実施例は、本発明を好適に説明するための例示に過ぎず、何ら本発明を限定するものではない。

本発明の発泡体の成形に用いた射出成形機は、型締め力450トン、可塑化能力197kg/h、スクリー径58mm、最大射出圧216MPa、最大射出率528cm<sup>3</sup>/sのタイプの装置で、コアバック成形法を応用した。

同じく本発明の発泡体の成形に用いた金型は、A4サイズの事務受け箱形状で、肉厚は4mmのもので行った。

#### (実施例1)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)1.1g/10分]65重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)5.0/10分]]35重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ジブチルパーオキシ)ヘキシン-3[過酸化物]0.15重量部およびトリメチ

ロールプロパントリメタクリレート [助剤] 0.2 重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー ((i) ミクロ凝集構造における連続相がゴム相で不連続相が結晶相、(ii) ゲル分率: 3.2 wt %) を得た。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー 100 重量部に対して、炭酸水素ナトリウムとクエン酸の混合物を 4 重量部を混練りしてマスターバッチ (発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー) を調製した。このマスターバッチを、200℃のシリンダー中で再度熔融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した (射出条件は、射出スピード: 200 mm/s、金型温度: 30℃)。

- 10 得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が 4.1 倍 (発泡倍率: 発泡後比重/発泡前比重) で、成形形状も良好で、感触はゴム状で良好 (アスカ C 硬度: 22) であった。

(実施例 2)

- エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム [EPT; エチレン含量 3  
15 8 モル%、ヨウ素価 12、MFR (ASTM 1238、190℃、2.16 kg 荷重) 1.1 g/10 分] 75 重量部と、ポリプロピレン [PP; プロピレン含有量 100%、MFR (ASTM 1238、190℃、2.16 kg 荷重) 5.0/10 分] 25 重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ (tert-ジブチルパーオキシ) ヘキシン-3 [過酸化物] 0.15 重量部およびトリメチ  
20 ロールプロパントリメタクリレート [助剤] 0.2 重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー ((i) ミクロ凝集構造における連続相がゴム相で不連続相が結晶相、(ii) ゲル分率: 4.2 wt %) を得た。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー 100 重量部に対して、炭酸水素ナトリウムとクエン酸の混合物を 4 重量部を混練りしてマスターバッチ (発  
25 泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー) を調製した。このマスターバッチを、200℃のシリンダー中で再度熔融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した (射出

条件は、射出スピード：200 mm/s、金型温度：30℃）。

得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が4.3倍（発泡倍率：発泡後比重／発泡前比重）で、成形形状も良好で、感触はゴム状で良好（アスカーC硬度：21）であった。

5 (実施例3)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16 kg荷重)1.1 g/10分]75重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16 kg荷重)5.0/10分]]25重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ジブチルパーオキシ)ヘキシン-3[過酸化物]0.10重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート[助剤]0.15重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー((i)マイクロ凝集構造における連続相がゴム相で不連続相が結晶相、(ii)ゲル分率：1.3 wt%)を得た。  
10 。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、230℃のシリンダー中で窒素ガスを0.3 wt%溶融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した（射出条件は、射出スピード：200 mm/s、金型温度：30℃）。

20 得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が4.2倍（発泡倍率：発泡後比重／発泡前比重）で、成形形状も良好で、感触はゴム状で良好であった（アスカーC硬度：22）。

(実施例4)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16 kg荷重)1.1 g/10分]75重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16 kg荷重)5

・ 0/10分] ] 25重量部とを、2, 5-ジメチルー2, 5-ジ (tert-ジブチルパーオキシ) ヘキシノー3 [過酸化物] 0.3重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート [助剤] 0.45重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー ((i) ミクロ凝集構造における連続相がゴム相で不連続相が結晶相、(ii) ゲル分率: 4.8 wt%) を調製した。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、230℃のシリンダー中で窒素ガスを0.3 wt%溶融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した (射出条件は、射出スピード: 200 mm/s、金型温度: 30℃) 。

得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が3.1倍 (発泡倍率: 発泡後比重/発泡前比重) で、成形形状も良好で、感触はゴム状で良好であった (アスカ-C硬度: 35) 。

(実施例5)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム [EPT; エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR (ASTM 1238、190℃、2.16 kg 荷重) 1.1 g/10分] 75重量部と、ポリプロピレン [PP; プロピレン含有量100%、MFR (ASTM 1238、190℃、2.16 kg 荷重) 5.0/10分] ] 25重量部とを、2, 5-ジメチルー2, 5-ジ (tert-ジブチルパーオキシ) ヘキシノー3 [過酸化物] 0.3重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート [助剤] 0.45重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー ((i) ミクロ凝集構造における連続相がゴム相で不連続相が結晶相、(ii) ゲル分率: 4.8 wt%) を調製した。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、230℃のシリンダー中で窒素ガスを0.1 wt%溶融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した (射出条件は、射出スピード: 200 mm/s、金型温度: 30℃) 。

)。

得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が2.3倍(発泡倍率:発泡後比重/発泡前比重)で、成形形状も良好で、感触はゴム状で良好であった(アスカーC硬度:38)。

5 (比較例1)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)1.1g/10分]50重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)5.0/10分]]50重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ジブチルパーオキシ)ヘキシン-3[過酸化物]0.15重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート[助剤]0.2重量部の存在下で、混練りして、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー((i)マイクロ凝集構造における連続相が結晶相で不連続相がゴム相、(ii)ゲル分率:39wt%)を得た。得られた発泡用オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、炭酸水素ナトリウムとクエン酸の混合物を4重量部を混練りしてマスターバッチ(発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー)を調製した。このマスターバッチを、200℃のシリンダー中で再度熔融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した。(射出条件は、射出スピード:200mm/s、金型温度:30℃)このオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形形状は良好であったが、発泡倍率が2.3倍(発泡倍率:発泡後比重/発泡前比重)で、感触はポリプロピレンの様に硬く良くなかった(アスカーC硬度:42)。

(比較例2)

25 エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量38モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)1.1g/10分]80重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン

含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)5.0/10分] 20重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ジブチルパーオキシ)ヘキシン-3[過酸化物]0.5重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート[助剤]0.2重量部の存在下で、混練りして

5、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー((i)マイクロ凝集構造が連続相が結晶相で不連続相がゴム相、(ii)ゲル分率:45wt%)を得た。得られた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、炭酸水素ナトリウムとクエン酸の混合物を4重量部を混練りして、マスターバッチ(発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー)を調製した。このマスターバッチを、200℃

10のシリンダー中で再度溶融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した(射出条件は、射出スピード:200mm/s、金型温度:30℃)。

得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形形状は悪く、発泡倍率も2.0倍(発泡倍率:発泡後比重/発泡前比重)で、感

15触はゴム状でなく硬く良くなかった(アスカ-C硬度:51)。第4図に示す「TEM写真によるマイクロ凝集構造」から明らかなように、ゴム相が不連続相となっているため、発泡倍率も低く、C硬度も高くなったものである。

(比較例3)

エチレン・プロピレン・非共役ジエン共重合体ゴム[EPT;エチレン含量3

208モル%、ヨウ素価12、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)1.1g/10分]75重量部と、ポリプロピレン[PP;プロピレン含有量100%、MFR(ASTM 1238、190℃、2.16kg荷重)5.0/10分] 25重量部とを、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ジブチルパーオキシ)ヘキシン-3[過酸化物]1.0重量部およびトリメチロールプロパントリメタクリレート[助剤]0.45重量部の存在下で、混練りして

25、発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー((i)マイクロ凝集構造における連続相が結晶相で不連続相がゴム相、(ii)ゲル分率:48wt%)を得た。得ら

れた発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマー100重量部に対して、230℃のシリンダー中で窒素ガスを0.3wt%溶融分散させた後、上下金型から形成される型閉じされている金型に発泡性オレフィン系熱可塑性エラストマーを射出した（射出条件は、射出スピード：200mm/s、金型温度：30℃）。

- 5 得られたオレフィン系熱可塑性エラストマー発泡成形品を取り出した所、成形品の発泡倍率が2.3倍（発泡倍率：発泡後比重/発泡前比重）で、成形形状は良好であったが、感触は非常に硬いものとなった（アスカーC硬度：43）。

- 原料の組成分率は、実施例4と全く同じであるが、過酸化物の添加量が多いため、ゲル分率は48%と高くなり、原料は最終的に成形されるまでの間に、過酷な剪断や熱履歴を受け、マイクロ凝集構造が反転し、連続相が結晶相に変わったため、発泡倍率が低下すると共に、柔軟性に乏しく、硬いものとなった。

- 15 以上の実施例および比較例の組成と評価を、それぞれ、以下の表1および表2に示した。表中の単位は重量部、発泡剤としてガスを用いた場合はwt%で示した。また、実施例1、2と、比較例1、2については、透過型電子顕微鏡によるマイクロ凝集構造を示す組織写真を第1図から第4図に示した。

(表1)

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
EPDM	65	75	75	75	75
PP	35	25	25	25	25
過酸化物	0.15	0.15	0.10	0.3	0.3
発泡剤	4	4	0.3wt%	0.3wt%	0.1wt%
ゲル分率	3.2%	4.2%	1.3%	4.8%	4.8%
発泡倍率	4.1	4.3	4.2	3.1	2.3
成形状態	良好	良好	良好	良好	良好
柔軟性 (C硬度)	22	21	22	35	38

23

TEM写真	図 1	図 2	—	—	—
-------	-----	-----	---	---	---

表中の発泡倍率以外の数字の単位は、重量部であり、発泡剤がガスの場合は、w t %である。

(表 2)

	比較例 1	比較例 2	比較例 3
E P D M	5 0	8 0	7 5
P P	5 0	2 0	2 5
過酸化物	0. 1 5	0. 5	1. 0
発泡剤	4	4	0. 3 w t %
ゲル分率	3 9 %	4 5 %	4 8 %
発泡倍率	2. 3	2. 0	2. 3
成形状態	良好	不良	不良
柔軟性 (C 硬度)	4 2	5 1	4 3
TEM写真	図 3	図 4	—

表中の発泡倍率以外の数字の単位は、重量部であり、発泡剤がガスの場合は、

5 w t %である。

上記表 1, 2 から明らかなように、E P D M と P P の配合比率が好適な範囲を逸脱した場合、TEM による観察から分かるように、実施例では、ゴム成分が連続相を構成していたのが、樹脂成分が連続相となってしまう、それによって、本発明の実施例では、発泡率が一番低い値でも 3. 1 であるのに対し、比較例では、2. 3 や、2. 2 などという低い値になってしまう。このように、本発明の特徴である「ゴム成分と樹脂成分との配合比を制御し、ミクロ凝集構造において、ゴム成分を連続相とし、樹脂層を不連続相とする」ことによって、発泡体の発泡倍率を大幅に増加させ、柔軟なクッション性や断熱性、リサイクル性に優れた発泡成形体を得ることのできる事が、理解される。

### 産業上の利用可能性

- 以上のように、本発明にかかる「発泡成形用樹脂組成物、発泡体、および発泡体の製造方法」によれば、自動車用内装材部品などに使用可能な、発泡倍率の自由度が高く、柔軟で、クッション性や断熱性、また型内発泡成形性に優れたリサイクル性のある発泡形品を提供することが可能になる。
- 5

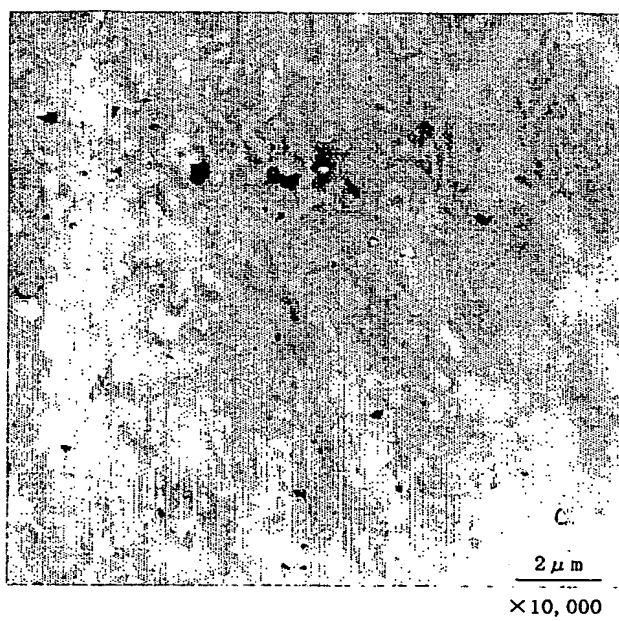
## 請求の範囲

1. 有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) との混練り反応によって得られ、そのマイクロ凝集構造において、前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) が連続相として存在するとともに、この連続相の中に前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) が不連続相として存在している分岐したゴム状オレフィン系軟質樹脂 (C) から構成されていることを特徴とする発泡体用樹脂組成物。
- 10 2. 前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) の配合量が、該有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) との合計 100 重量部に対して、60 重量部以上 100 重量部未満であることを特徴とする請求の範囲第 1 項に記載の発泡体用樹脂組成物。
- 15  $\rightarrow 9-296063$   
 $60 \sim 95$
3. 有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) との混練り反応によって得られ、そのマイクロ凝集構造において、前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) が連続相として存在するとともに、この連続相の中に前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) が不連続相として存在している分岐したゴム状オレフィン系軟質樹脂 (C) を発泡して得られたことを特徴とする発泡体。
- 20 4. 前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) の配合量が、該有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム (A) と前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂 (B) との合計 100 重量部に対して、60 重量部以上 100 重量部未満であることを特徴とする請求の範囲第 3 項に記載の発泡体。
- 25

5. 有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）とを、有機過酸化物の存在下で、混練り反応させて、そのミクロ凝集構造において、前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）が連続相として存在するとともに、この連続相の中に前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）が不連続相として存在している分岐したゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）を調製する工程と、
- 前記ゴム状オレフィン系軟質樹脂（C）を発泡させる工程と、
- を有することを特徴とする発泡体の製造方法。
6. 前記有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）の配合量を、該有機過酸化物架橋型オレフィン系共重合体ゴム（A）と前記有機過酸化物分解型結晶性オレフィン樹脂（B）との合計100重量部に対して、60重量部以上100重量部未満とすることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の発泡体の製造方法。

## 【図1】

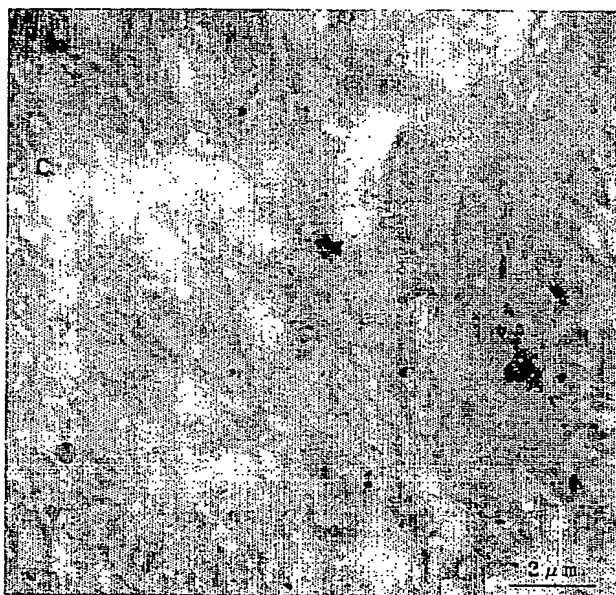
(実施例1) 連続相(ゴム成分:暗領域)/不連続相(樹脂成分:明領域)



**THIS PAGE LEFT BLANK**

【図2】

(実施例2) 連続相(ゴム成分:暗領域)/不連続相(樹脂成分:明領域)



×10,000

**THIS PAGE LEFT BLANK**

## 【図3】

(実施例3) 連続相(樹脂成分: 明領域)/不連続相(ゴム成分: 暗領域)

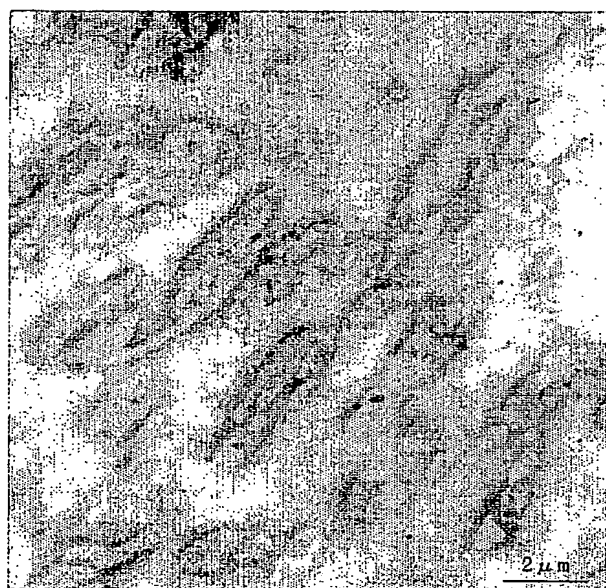


2  $\mu$ m  
×10,000

**THIS PAGE LEFT BLANK**

## 【図4】

(実施例4) 連続相(樹脂成分:明領域)/不連続相(ゴム成分:暗領域)



×10,000

**THIS PAGE LEFT BLANK**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016468

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08J9/04, 3/24, C08L23/16

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08J9/04, C08L23/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2003-192853 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 09 July, 2003 (09.07.03), Claims; Par. Nos. [0033] to [0036], [0043] to [0047], [0057] (Family: none)	1-4
P, X	JP 2004-51793 A (San'aroma Kabushiki Kaisha), 19 February, 2004 (19.02.04), Claims; Par. Nos. [0009] to [0012], [0023] to [0024], [0030] to [0031], [0037] to [0044] (Family: none)	1-6
X	JP 9-296063 A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.), 18 November, 1997 (18.11.97), Claims; Par. Nos. [0041] to [0050] & EP 794226 A1 & US 5786403 A	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 January, 2005 (05.01.05)Date of mailing of the international search report  
25 January, 2005 (25.01.05)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/016468

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 58-142917 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 25 August, 1983 (25.08.83), Claims; page 2, lower left column, lines 1 to 7 (Family: none)	1-6

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2004/016468

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08J9/04, 3/24, C08L23/16

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08J9/04, C08L23/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2003-192853 A (三井化学株式会社) 2003.07.09, 特許請求の範囲, 【0033】～【0036】, 【0043】～【0047】, 【0057】 (ファミリーなし)	1-4
P X	JP 2004-51793 A (サンアロマー株式会社) 2004.02.19, 特許請求の範囲, 【0009】～【0012】, 【0023】～【0024】, 【0030】～【0031】, 【0037】～【0044】 (ファミリーなし)	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05.01.2005

国際調査報告の発送日

25.1.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

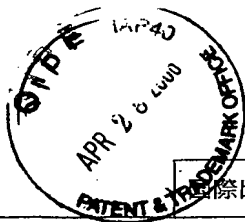
特許庁審査官 (権限のある職員)

内田 靖恵

4 J

9553

電話番号 03-3581-1101 内線 3455



国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP2004/016468

C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 9-296063 A (三井石油化学工業株式会社) 1997. 11. 18, 特許請求の範囲, 【0041】 ~ 【0050】 & EP 794226 A1 & US 5786403 A	1-6
A	JP 58-142917 A (日立化成工業株式会社) 1983. 08. 25, 特許請求の範囲, 第2頁左下欄第1~7行 (ファミリーなし)	1-6